

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

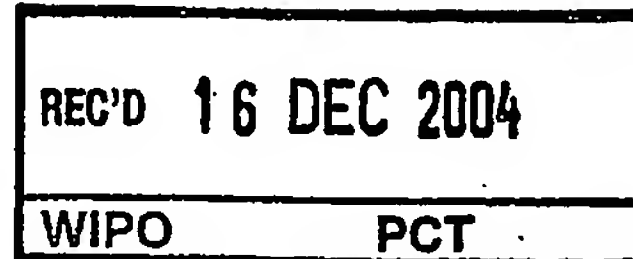
28.10.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年11月12日
Date of Application:

出願番号 特願2003-382655
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP2003-382655]



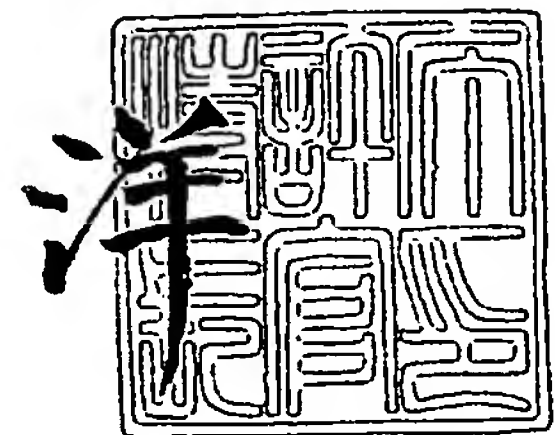
出願人 日産自動車株式会社
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年12月 3日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2004-3110514

【書類名】 特許願
【整理番号】 NM03-01401
【提出日】 平成15年11月12日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01M 8/02
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地 日産自動車株式会社内
 【氏名】 下井 亮一
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地 日産自動車株式会社内
 【氏名】 大間 敦史
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地 日産自動車株式会社内
 【氏名】 小野 義隆
【特許出願人】
 【識別番号】 000003997
 【氏名又は名称】 日産自動車株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100075513
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 後藤 政喜
【選任した代理人】
 【識別番号】 100084537
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 松田 嘉夫
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 019839
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9706786

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

互いに対向する各電極間に挟まれるアノード側とカソード側の両面に触媒層を備え、
イオン透過性を有する燃料電池用電解質膜において、
前記触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
少なくとも前記アノード側の触媒層の周囲に境界層を設け、
この境界層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
前記境界層における触媒担持量を前記触媒層における触媒担持量より小さくしたことを
特徴とする燃料電池用電解質膜。

【請求項 2】

前記境界層における前記導電性粒子間の空隙率を前記触媒層における前記導電性粒子間の
空隙率より小さくしたことを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 3】

前記境界層における前記導電性粒子の粒径を前記触媒層における前記導電性粒子の粒径
より小さくしたことを特徴とする請求項 2 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 4】

前記境界層における前記導電性粒子に親水処理を施したことを特徴とする請求項 1 から
3 のいずれか一つに記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 5】

イオン透過性を有する電解質膜と、
この電解質膜を挟んで対向する各電極と、
各電解質膜とこの各電極の間に介在するアノード側とカソード側の各触媒層と、
この各触媒層に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給する各ガス流路とを備えて発電する燃
料電池において、
前記触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
少なくとも前記アノード側の触媒層の周囲に境界層を設け、
この境界層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
前記境界層における触媒担持量を触媒層における触媒担持量より小さく設定したことを
特徴とする燃料電池。

【請求項 6】

前記境界層をガスが供給される入口ガスマニホールドに近接する部位に形成したことを
特徴とする請求項 5 に記載の燃料電池。

【請求項 7】

互いに対向する各電極間に挟まれるアノード側とカソード側の両面に触媒層を備え、
イオン透過性を有する燃料電池用電解質膜において、
前記触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
少なくとも前記アノード側の触媒層の周囲に境界層を設け、
この境界層を親水処理を施した導電性粒子によって形成したことを特徴とする燃料電池
用電解質膜。

【請求項 8】

前記境界層における前記導電性粒子間の空隙率を前記触媒層における前記導電性粒子間の
空隙率より小さくしたことを特徴とする請求項 7 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 9】

前記境界層における前記導電性粒子の粒径を前記触媒層における前記導電性粒子の粒径
より小さくしたことを特徴とする請求項 8 に記載の燃料電池用電解質膜。

【請求項 10】

イオン透過性を有する電解質膜と、
この電解質膜を挟んで対向する各電極と、
各電解質膜とこの各電極の間に介在するアノード側とカソード側の各触媒層と、
この各触媒層に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給する各ガス流路とを備えて発電する燃

料電池において、

前記触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、
少なくとも前記アノード側の触媒層の周囲に境界層を設け、
この境界層を親水処理を施した導電性粒子によって形成したことを特徴とする燃料電池。

【請求項 11】

前記境界層をガスが供給される入口ガスマニホールドに近接する部位に形成したことを特徴とする請求項 10 に記載の燃料電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用電解質膜および燃料電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池用電解質膜および燃料電池の改良に関するものである。

【背景技術】

【0002】

固体高分子電解質膜を用いた燃料電池では、電気化学反応を促進させるための触媒層を併用し、固体高分子電解質膜の両膜面に触媒層を介在させている。この触媒層は、例えば白金などの触媒を担持した例えばカーボン粒子などを凝集、積層して形成されている。

【0003】

このような燃料電池は、水素ガスが供給されるアノード側電極では触媒を介して $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ の電気化学反応が行われ、酸素が供給されるカソード側電極では触媒を介して $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ の電気化学反応が行われ、各電極に起電力が生じる。

【0004】

上記した燃料電池の作動時に、アノード側電極に供給される水素ガス中に何らかの原因で酸素が混じると、触媒層の周辺に酸素が残留し、水素と酸素の反応によって燃焼熱が生じ、触媒層の端部付近の電解質膜に局所的な温度上昇を生じ、電解質膜が熱劣化する傾向があった。

【0005】

ところで、このような事態を回避するために、特許文献1には、触媒を担持していないカーボン粒子を敷き詰めた耐火層を触媒層の周囲に設けたものが提案されている。これは耐火層において電気化学反応をほとんど生じることなく電解質膜1の温度上昇を抑制できるとしている。

【特許文献1】特開平7-201346号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、このような特許文献1に記載された燃料電池にあっては、触媒を持たない耐火層において電気化学反応がほとんど生じないために、未反応ガスが多くなり、この未反応ガスが触媒層の端部付近で燃焼反応し、触媒層と耐火層の境界部に局所的な温度上昇が生じ、電解質膜の耐久性が低下する可能性があった。

【0007】

本発明は、上記問題点を解決するためになされ、燃料電池における電解質膜の耐久性を向上させることを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明は、互いに対向する各電極間に挟まれるアノード側とカソード側の両面に触媒層を備え、イオン透過性を有する燃料電池用電解質膜において、触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、触媒層の周囲に境界層を設け、この境界層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、境界層における触媒担持量を前記触媒層における触媒担持量より小さくした。

【0009】

また、互いに対向する各電極間に挟まれるアノード側とカソード側の両面に触媒層を備え、イオン透過性を有する燃料電池用電解質膜において、触媒層を触媒を担持した導電性粒子によって形成し、触媒層の周囲に境界層を設け、この境界層を親水処理を施した導電性粒子によって形成した。

【発明の効果】

【0010】

本発明によると、境界層が触媒担持量の少ない導電性粒子からなることにより、境界層

においても未反応ガスが電気化学反応することが触媒を介して促される。境界層を触媒層より少ない触媒担持量にしたことにより、境界層において電気化学反応熱を減らすとともに、未反応ガスを減らすことが可能となる。このために、未反応ガスが触媒層の端部付近で燃焼反応が集中することを抑制し、触媒層と境界層の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。こうして電解質膜の温度分布を均一化することにより、電解質膜の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0011】

また、境界層に親水処理を施して境界層内に水を溜めることにより、境界層を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層と境界層の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層内に水を溜めることにより、境界層の熱伝導率が高まり、電解質膜の温度分布を均一化することができる。これにより、電解質膜の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

本発明の第1実施形態の構成を説明する。

【0013】

図1に本発明が適用可能な燃料電池の一例を示す。この燃料電池のセル20は、イオン透過性を有する電解質膜1と、この電解質膜1を挟んで対向するアノード側とカソード側の各電極7と、この各電解質膜1と各電極7の間に介在する各触媒層2と、この各触媒層2に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流路10とを主体として構成される。さらに、セル20は、アノード側とカソード側の各ガス流路10を画成する各セパレータ9と、各ガス流路10を密封するシール材8とを備える。燃料電池は複数のセル20を積層して形成される。

【0014】

アノード側のガス流路8には燃料ガスとして例えば水素ガスが供給される。カソード側のガス流路8には酸化剤ガスとして例えば空気が供給される。

【0015】

各電極7とシール材8は各セパレータ9により挟持される。なお、ガスシール材8は電解質膜1の両側を挟み込むようにして設置してもよい。

【0016】

各触媒層2は電解質膜1のアノード側とカソード側の両面にコーティングして形成される。電解質膜1は各電極7により挟持される。

【0017】

なお、これに限らず、触媒層2は電極7の電解質膜1に対峙する電極面にコーティングして形成してもよい。

【0018】

図4は、本発明の第1実施形態の電池用電解質膜を示している。この電解質膜1の両膜面にてそれぞれの中央の領域に触媒層2を設け、この触媒層2の周囲に境界層3をコーティングして形成する。

【0019】

なお、これに限らず、電解質膜1のアノード側膜面にのみ境界層3を形成し、カソード側膜面に境界層3を形成しない構成としてもよい。

【0020】

また、触媒層2を電解質膜1にコーティングし、境界層3を電極7にコーティングしてもよい。また、これと逆に、触媒層2を電極7にコーティングし、境界層3を電解質膜1にコーティングしてもよい。

【0021】

触媒層2は電解質膜1の中央の領域に形成する。境界層3は電解質膜1の触媒層2を囲む領域に全周にわたって帯状に延びる。

【0022】

電解質膜 1 の膜面には触媒層 2 および境界層 3 がコーティングされない余剰領域 15 が触媒層 2 を囲む領域に全周にわたって帯状に延びる。

【0023】

なお、これに限らず、余剰領域 15 を廃止して、境界層 3 または触媒層 2 を電解質膜 1 の端部に達するまでコーティングしてもよい。

【0024】

なお、従来は、図 2 に示すように、この電解質膜 1 の中央の領域に触媒層 2 をコーティングしている。

【0025】

また、図 3 は、同じく従来の燃料電池用電解質膜の断面を示し、この電解質膜 1 の膜面に白金などの触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 を敷き詰めた触媒層 2 がコーティングされている。

【0026】

図 5 は、比較例として特開平 7-201346 号公報記載の燃料電池用電解質膜の断面を示している。この電解質膜 1 の膜面に触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 を敷き詰めた触媒層 2 がコーティングされるとともに、触媒を担持していない導電性粒子 4 を敷き詰めた耐火層 14 がコーティングされている。

【0027】

図 6 は、本発明の第 1 実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。この電解質膜 1 の膜面に触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 を敷き詰めた触媒層 2 がコーティングされるとともに、触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 を敷き詰めた境界層 3 がコーティングされている。

【0028】

そして本発明の要旨とするところであるが、境界層 3 における触媒担持量を触媒層 2 における触媒担持量より小さく設定したことを特徴とする。境界層 3 の触媒担持量は触媒層 2 の触媒担持量より所定の比率で小さく設定する。この触媒担持量の比率は、実験結果などに基づいて任意に設定する。

【0029】

導電性粒子 4 は例えばカーボンの粒子によって形成する。触媒粒子 5 は例えば白金の粒子によって形成する。

【0030】

境界層 3 は触媒層 2 の端部から隙間なく連なる。触媒層 2 の導電性粒子 4 と境界層 3 の導電性粒子 4 は電解質膜 1 の膜面に対して略直交する面上で互いに接する。

【0031】

なお、これに限らず、触媒層 2 の導電性粒子 4 と境界層 3 の導電性粒子 4 は電解質膜 1 の膜面に対して傾斜する面上で互いに接するように形成してもよい。

【0032】

また、触媒層 2 の導電性粒子 4 と境界層 3 の導電性粒子 4 が電解質膜 1 の膜面上にて重合するように形成してもよい。導電性粒子 4 に対する触媒担持量が電解質膜 1 の膜面に対して略直交する方向について変化させることも可能である。

【0033】

境界層 3 と触媒層 2 において、導電性粒子 4 の粒径は略等しい。境界層 3 と触媒層 2 において、導電性粒子 4 間の空隙率は略等しい。

【0034】

境界層 3 と触媒層 2 を構成する導電性粒子 4 は撥水性を持つ。

【0035】

以上のように構成されて、次に作用について説明する。

【0036】

セル 20 は各触媒層 2 にて行われる電気化学反応によって発電する。これについて詳述すると、アノード側のガス流路 8 を通して供給される燃料ガスはガス拡散電極 7 を介して

アノード側の触媒層 2 に導かれる。このアノード側触媒層 2 において、燃料ガス中の水素がプロトンに変換される ($\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$)。このプロトンは水和状態で電解質膜 1 を透過 (拡散) してカソード側の触媒層 2 に至る。カソード側のガス流路 8 を通して供給される酸化剤ガスはガス拡散電極 7 を介してカソード側の触媒層 2 に導かれる。このカソード側触媒層 2 において、電解質膜 1 を透過したプロトンと酸化剤ガス中の酸素が結びつくことにより、水が生成される ($\text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^- \rightarrow 2\text{H}_2\text{O}$)。このようにして、各触媒層 2 にて電気化学反応が進行することで、各電極 7 に起電力が生じる。

【0037】

上記した燃料電池の作動時に、アノード側電極 7 に供給される水素ガス中に何らかの原因で酸素が混じると、アノード側触媒層 2 の周辺に酸素が残留し、水素と酸素の反応によって燃焼熱が生じる可能性がある。

【0038】

図 2、図 3 に示す従来例は、触媒層 2 の端部においても電気化学反応や燃焼反応が起こることから発熱を生じ、触媒層 2 の端部付近の電解質膜 1 に局所的な温度上昇を生じ、電解質膜 1 が熱劣化する傾向があった。

【0039】

図 5 に示す特開平 7-201346 号公報に開示された比較例は、これに対処して提案されたものであり、触媒を担持しない導電性粒子 4 からなる耐火層 14 において電気化学反応をほとんど生じることなく電解質膜 1 の温度上昇を抑制できるとしている。

【0040】

しかし、この比較例は、耐火層 14 において電気化学反応がほとんど生じないために、水素と酸素の未反応ガスが多くなり、この未反応ガスが触媒層 2 の端部付近で燃焼反応し、触媒層 2 と耐火層 14 の境界部に局所的な温度上昇が生じる可能性がある。

【0041】

また、アノード側の耐火層 14 にて水素分子のまま触媒を担持しないカーボン粒子層 4 間を通過した水素ガスが電解質膜 1 に到達し、さらに電解質膜 1 を水素分子の状態のまま通過してカソード側に到ると、カソード側で酸素と燃焼反応し、この燃焼熱によって電解質膜 1 を劣化させる可能性もあった。

【0042】

これに対して図 6 に示す本発明の第 1 実施形態は、境界層 3 が触媒担持量の少ない導電性粒子 4 からなることにより、境界層 3 においても未反応ガスが電気化学反応することが触媒粒子 5 を介して促される。境界層 3 を触媒層 2 より少ない触媒担持量にしたことにより、境界層 3 において電気化学反応熱を減らすとともに、未反応ガスを減らすことが可能となる。このために、未反応ガスが触媒層 2 の端部付近で燃焼反応が集中することを抑制し、触媒層 2 と境界層 3 の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。こうして電解質膜 1 の温度分布を均一化することにより、電解質膜 1 の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0043】

図 7 は、本発明の第 2 実施形態の燃料電池用電解質膜を示している。この電解質膜 1 の中央部には穴 19 が開いている。境界層 3 は触媒層 2 の外側端部と内側端部に沿って帯状に延びている。

【0044】

これにより、境界層 3 は触媒層 2 の外側端部と内側端部において未反応ガスが燃焼反応することを抑制し、電解質膜 1 の熱劣化などを抑えられる。

【0045】

図 8 は、本発明の第 3 実施形態の燃料電池用セパレータを示している。このセパレータ 9 には、ガスを流すガス流路 10 と、ガスを給排する入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 を有する。他の開口部 17, 18 は他のガスや冷却水を導くものである。なお、発電エリア 13 は触媒層 2 の大きさを表している。

【0046】

このガス流路 10 は複数の流路が並列しかつ蛇行して延びる、サーペンタイン流路もしくは蛇行流路と呼ばれるものである。

【0047】

なお、これに限らず、ガス流路 10 は樽型合わせ流路もしくはインターディジテッド流路などでもよい。

【0048】

図 9 は、本発明の第 3 実施形態の燃料電池用電解質膜を示している。この電解質膜 1 の膜面には触媒層 2 の周囲に 2 つの境界層 3 を入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に近接する部位に限定して形成する。各境界層 3 は入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に沿って帯状に延びている。各境界層 3 は矩形をした触媒層 2 の隅部に設ける。

【0049】

本実施形態では、図 9 に示すように、矩形をした触媒層 2 に対して境界層 3 を凸形に突出する形状にしている。

【0050】

なお、これに限らず、図 10 に示すように、矩形をした触媒層 2 を一部切り欠いて境界層 3 を形成してもよい。

【0051】

触媒層 2 の端部において入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に近接する部位は、ガスの分布が増えるため、燃焼熱が局所的に生じる可能性がある。これに対処して、境界層 3 を入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に近接する部位に限定して形成することにより、この部分の燃焼熱を抑えるとともに、境界層 3 の塗布量を低減することができる。そして、触媒層 2 の面積が境界層 3 によって削減されることを抑えられ、セル 20 の起電力を維持できる。

【0052】

図 11 は、本発明の第 4 実施形態の燃料電池用セパレータを示している。このセパレータ 9 に画成されるガス流路 10 は複数の流路が並列して直線状延びている。他の開口部 17, 18 は他のガスや冷却水を導くものである。なお、発電エリア 13 は触媒層 2 の大きさを表している。入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 は発電エリア 13 の両端部に沿って開口している。

【0053】

図 12 は、本発明の第 4 実施形態の燃料電池用電解質膜を示している。この電解質膜 1 の膜面には触媒層 2 の周囲に 2 つの境界層 3 を入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に近接する部位に限定して形成する。各境界層 3 は入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に沿って帯状に延びている。各境界層 3 は矩形をした触媒層 2 の 2 辺に沿って設ける。

【0054】

この場合も、境界層 3 を入口ガスマニホールド 11 と出口ガスマニホールド 12 に近接する部位に限定して形成することにより、この部分の燃焼熱を抑えるとともに、境界層 3 の塗布量を低減することができる。そして、触媒層 2 の面積が境界層 3 によって削減されることを抑えられ、セル 20 の起電力を維持できる。

【0055】

図 13 は、本発明の第 5 実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態でも前記各実施形態と同様に境界層 3 を触媒層 2 より少ない量の触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 によって形成する。

【0056】

そして本実施形態では境界層 3 における導電性粒子 4 間の空隙率を触媒層 2 における導電性粒子 4 間の空隙率より小さくする。この境界層 3 と触媒層 2 における導電性粒子 4 間の空隙率の比率は、実験結果などに基づいて任意に設定する。

【0057】

境界層 3 と触媒層 2 において、導電性粒子 4 の粒径は略等しい。

【0058】

導電性粒子 4 を触媒層 2 より境界層 3 にて密集させることにより、境界層 3 を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層 2 の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層 2 と境界層 3 の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層 3 を高密度化することにより、境界層 3 の熱伝導率が高まり、電解質膜 1 の温度分布を均一化することができる。これにより、電解質膜 1 の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0059】

図 14 は、本発明の第 6 実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態でも前記各実施形態と同様に境界層 3 を触媒層 2 より少ない量の触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 によって形成する。

【0060】

そして本実施形態では境界層 3 における導電性粒子 4 の粒径を触媒層 2 における導電性粒子 4 の粒径より小さくする。そして、境界層 3 における導電性粒子 4 間の空隙率を触媒層 2 における導電性粒子 4 間の空隙率より小さくする。この境界層 3 と触媒層 2 における導電性粒子 4 間の空隙率の比率は、実験結果などに基づいて任意に設定する。

【0061】

境界層 3 の導電性粒子 4 の粒径を小さくすることで容易に境界層 3 を高密度化することができる。境界層 3 を高密度化することにより、第 5 実施形態の作用効果を高められる。すなわち、境界層 3 を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層 2 の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層 2 と境界層 3 の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層 3 の熱伝導率が高まり、電解質膜 1 の温度分布を均一化することができる。これにより、電解質膜 1 の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0062】

図 15 は、本発明の第 7 実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態でも前記各実施形態と同様に境界層 3 を触媒層 2 より少ない量の触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 によって形成する。

【0063】

そして本実施形態では境界層 3 における導電性粒子 4 に対して親水材料 6 により親水処理を施す。

【0064】

カーボン粒子からなる導電性粒子 4 に親水化処理を施す方法としては、例えば次のものがある。

- ・カーボン粒子に電解酸化や酸性溶液中での酸化などの処理を施してカーボン粒子の表面に親水材料 6 として官能基を付与する方法。
- ・カーボン粒子の表面に親水材料 6 として界面活性剤を付与する方法。
- ・カーボン粒子の表面に親水材料 6 として SiO_2 や TiO_2 などの酸化物や電解質膜として用いる材料の液体状や粉末状のものを付着させる方法。
- ・カーボン粒子の表面にプラズマ処理などを施して表面を粗面化する方法。

【0065】

境界層 3 と触媒層 2 において、導電性粒子 4 の粒径は略等しい。境界層 3 と触媒層 2 において、導電性粒子 4 間の空隙率は略等しい。

【0066】

境界層 3 に親水処理を施して境界層 3 内に水を溜めることにより、境界層 3 を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層 2 の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層 2 と境界層 3 の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層 3 内に水を溜めることにより、境界層 3 の熱伝導率が高まり、電解質膜 1 の温度分布を均一化することができる。これにより、電解質膜 1 の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性

を高められる。

【0067】

図16は、本発明の第8実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態では前記各実施形態と異なり境界層3を触媒を担持しない導電性粒子4によって形成する。そして境界層3における導電性粒子4に対して親水材料6により親水処理を施す。

【0068】

境界層3と触媒層2において、導電性粒子4の粒径は略等しい。境界層3と触媒層2において、導電性粒子4間の空隙率は略等しい。

【0069】

境界層3に親水処理を施して境界層3内に水を溜めることにより、境界層3を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層2の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層2と境界層3の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層3内に水を溜めることにより、境界層3の熱伝導率が高まり、電解質膜1の温度分布を均一化することができる。これにより、電解質膜1の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0070】

図17に示すグラフは、横軸をその下方に図示した電解質膜1の位置とし、縦軸を電解質膜1の温度としている。このグラフから、図3に示す従来例の特性は、触媒層2の端部になるのしたがって温度が上昇していることがわかる。図5に示す比較例の特性は、耐火層14の端部では電気化学反応がほとんどないので温度が低くなるが、触媒層2と耐火層14の境界部に局所的な温度上昇が生じていることがわかる。これらに対して、第8実施形態の特性は、境界層3の端部では温度が低くなるとともに、触媒層2と境界層3の境界部に局所的な温度上昇が抑えられていることがわかる。

【0071】

図18は、本発明の第9実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態でも前記図16に示す実施形態と同様に境界層3を触媒を担持しない、かつ親水材料6により親水処理を施した導電性粒子4によって形成する。

【0072】

そして本実施形態では境界層3における導電性粒子4間の空隙率を触媒層2における導電性粒子4間の空隙率より小さくする。この境界層3と触媒層2における導電性粒子4間の空隙率の比率は、実験結果などに基づいて任意に設定する。

【0073】

境界層3と触媒層2において、導電性粒子4の粒径は略等しい。

【0074】

導電性粒子4を触媒層2より境界層3にて密集させることにより、境界層3を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層2の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層2と境界層3の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層3を高密度化することにより、境界層3の熱伝導率が高まり、電解質膜1の温度分布を均一化することができる。これにより、親水処理を施して境界層3内に水を溜めることによって温度上昇を抑える作用と相まって電解質膜1の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0075】

図19は、本発明の第10実施形態の燃料電池用電解質膜の断面を示している。本実施形態でも前記図16に示す実施形態と同様に境界層3を触媒を担持しない、かつ親水材料6により親水処理を施した導電性粒子4によって形成する。

【0076】

そして本実施形態では境界層3における導電性粒子4の粒径を触媒層2における導電性粒子4の粒径より小さくする。そして、境界層3における導電性粒子4間の空隙率を触媒層2における導電性粒子4間の空隙率より小さくする。この境界層3と触媒層2における導電性粒子4間の空隙率の比率は、実験結果などに基づいて任意に設定する。

【0077】

境界層3の導電性粒子4の粒径を小さくすることで容易に境界層3を高密度化することができる。境界層3を高密度化することにより、第5実施形態の作用効果を高められる。すなわち、境界層3を未反応ガスが透過することを抑制して、触媒層2の端部付近で行われる燃焼反応によって触媒層2と境界層3の境界部に局所的な温度上昇が生じることを回避できる。そして、境界層3の熱伝導率が高まり、電解質膜1の温度分布を均一化することができる。これにより、親水処理を施して境界層3内に水を溜めることによって温度上昇を抑える作用と相まって電解質膜1の熱劣化などを抑えられ、燃料電池の耐久性を高められる。

【0078】

前記第8～10実施形態を、図9に示す燃料電池用電解質膜1に適用してもよい。この電解質膜1の膜面には触媒層2の周囲に2つの境界層3を入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に近接する部位に限定して形成する。各境界層3は入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に沿って帯状に延びている。各境界層3は矩形をした触媒層2の隅部に設ける。

【0079】

図9に示すように、矩形をした触媒層2に対して境界層3を凸形に突出する形状にしている。

【0080】

なお、これに限らず、図10に示すように、矩形をした触媒層2を一部切り欠いて境界層3を形成してもよい。

【0081】

この場合、触媒層2の端部において入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に近接する部位は、ガスの分布が増えるため、燃焼熱が局所的に生じる可能性がある。これに対処して、境界層3を入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に近接する部位に限定して形成することにより、この部分の燃焼熱を抑えるとともに、境界層3の塗布量を低減することができる。そして、触媒層2の面積が境界層3によって削減されることを抑えられ、セル20の起電力を維持できる。

【0082】

前記第8～10実施形態を、図12に示す燃料電池用電解質膜1に適用してもよい。この電解質膜1の膜面には触媒層2の周囲に2つの境界層3を入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に近接する部位に限定して形成する。各境界層3は入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に沿って帯状に延びている。各境界層3は矩形をした触媒層2の2辺に沿って設ける。

【0083】

この場合も、境界層3を入口ガスマニホールド11と出口ガスマニホールド12に近接する部位に限定して形成することにより、この部分の燃焼熱を抑えるとともに、境界層3の塗布量を低減することができる。そして、触媒層2の面積が境界層3によって削減されることを抑えられ、セル20の起電力を維持できる。

【0084】

本発明は上記の実施形態に限定されず、その技術的な思想の範囲内において種々の変更がなしうることは明白である。

【産業上の利用可能性】

【0085】

本発明は、燃料電池、特に触媒層を備える部材として燃料電池用電解質膜や電極などに適用できる。

【図面の簡単な説明】

【0086】

【図1】 本発明が適用可能な燃料電池のセルの概略断面図。

【図2】 従来の燃料電池用電解質膜の概略平面図。

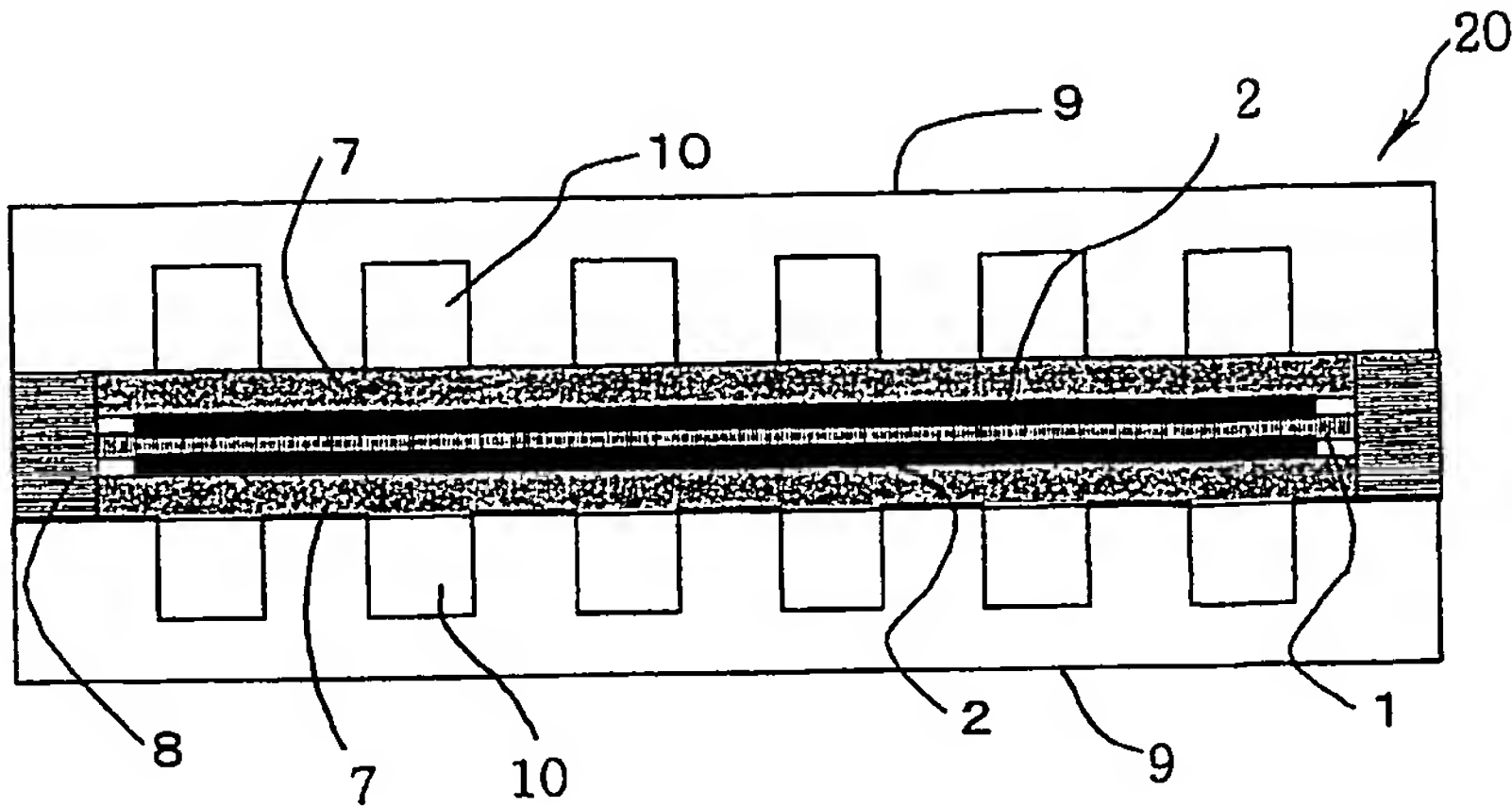
- 【図3】 同じく従来の燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図4】 本発明の第1実施形態における燃料電池用電解質膜の概略平面図。
【図5】 特開平7-201346号公報記載の燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図6】 本発明の第1実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図7】 本発明の第2実施形態における燃料電池用電解質膜の概略平面図。
【図8】 本発明の第3実施形態における燃料電池用セパレータの概略平面図。
【図9】 同じく本発明の第3実施形態における燃料電池用電解質膜の概略平面図。
【図10】 同じく本発明の第3実施形態における燃料電池用電解質膜の概略平面図。
【図11】 本発明の第4実施形態における燃料電池用セパレータの概略平面図。
【図12】 同じく本発明の第4実施形態における燃料電池用電解質膜の概略平面図。
【図13】 本発明の第5実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図14】 本発明の第6実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図15】 本発明の第7実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図16】 本発明の第8実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図17】 同じく本発明の第8実施形態などにおける膜面温度の分布を示す特性図。
【図18】 本発明の第9実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。
【図19】 本発明の第10実施形態における燃料電池用電解質膜の概略断面図。

【符号の説明】

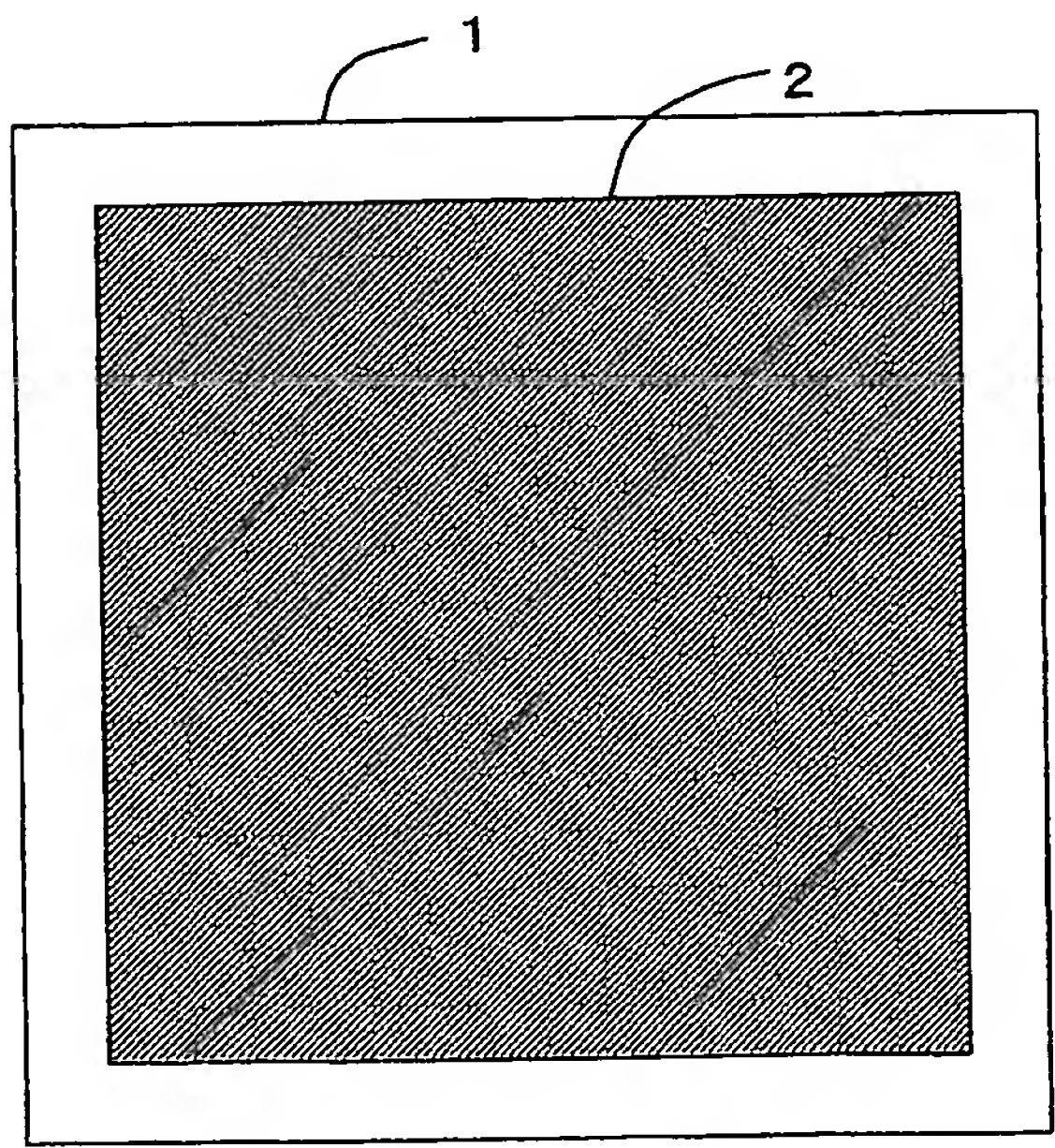
【0087】

- 1 電解質膜
- 2 触媒層
- 3 境界層
- 4 導電性粒子
- 5 触媒粒子
- 7 電極
- 9 セパレータ
- 10 ガス流路
- 11 入口ガスマニホールド
- 12 出口ガスマニホールド

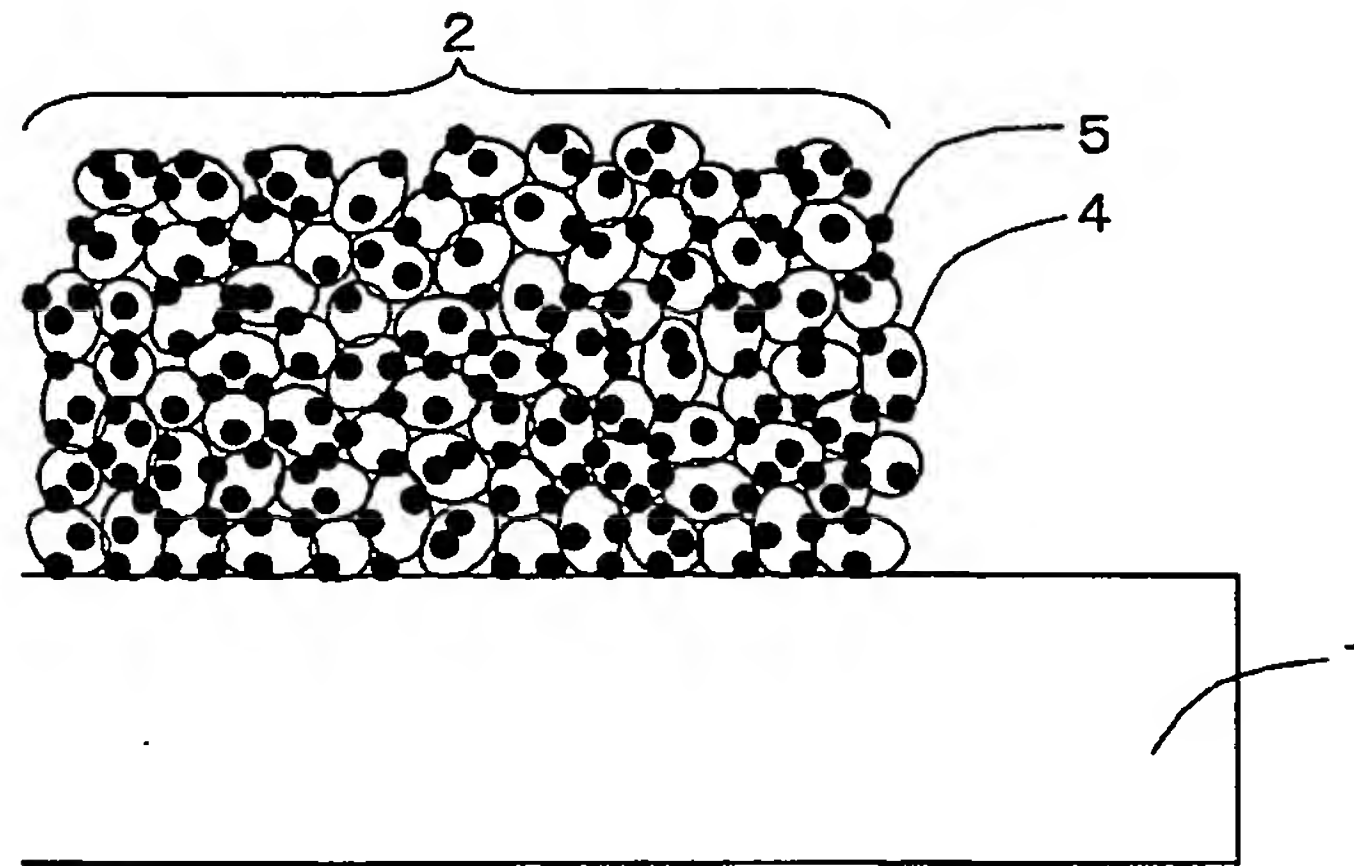
【書類名】 図面
【図 1】



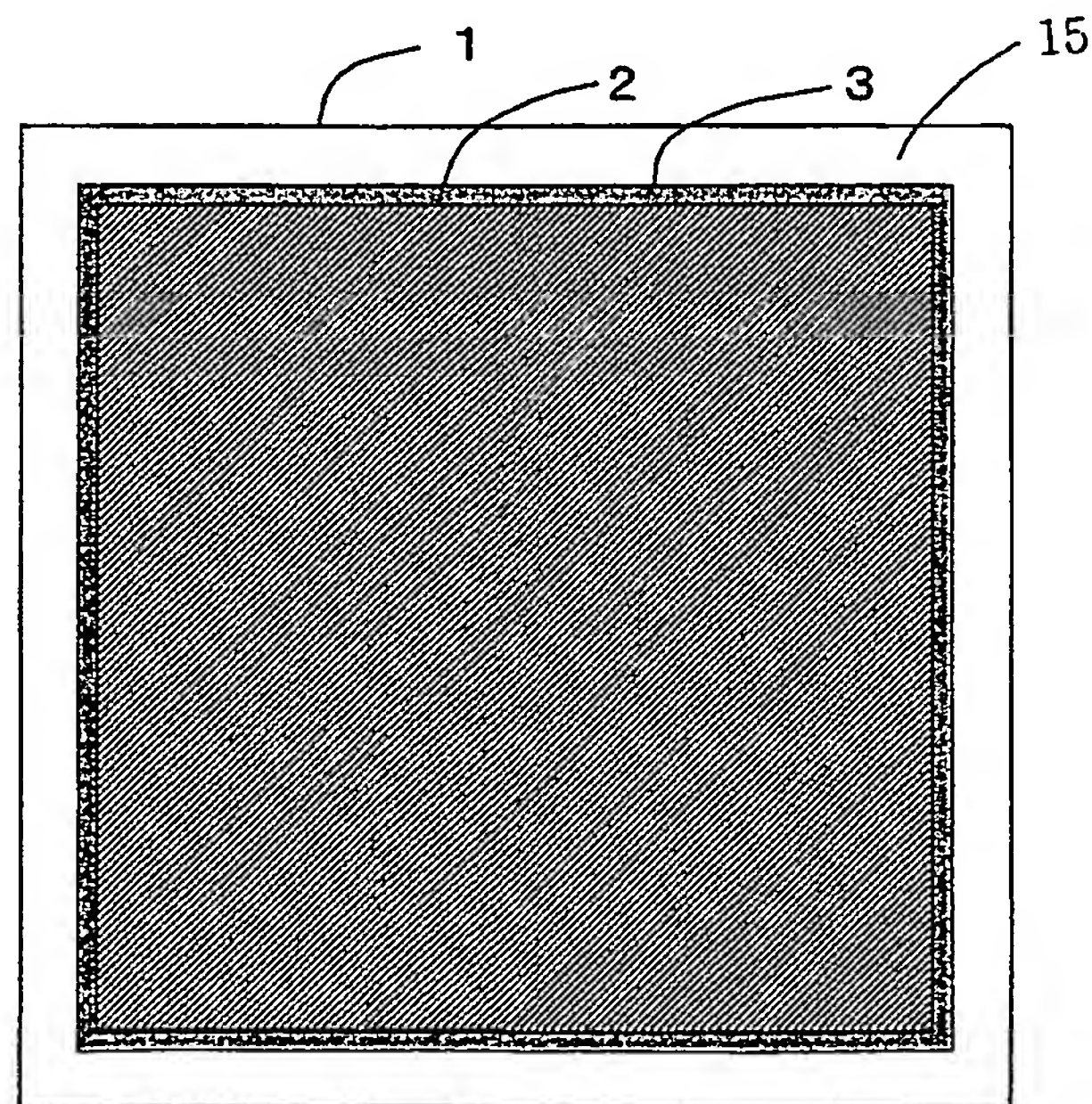
【図 2】



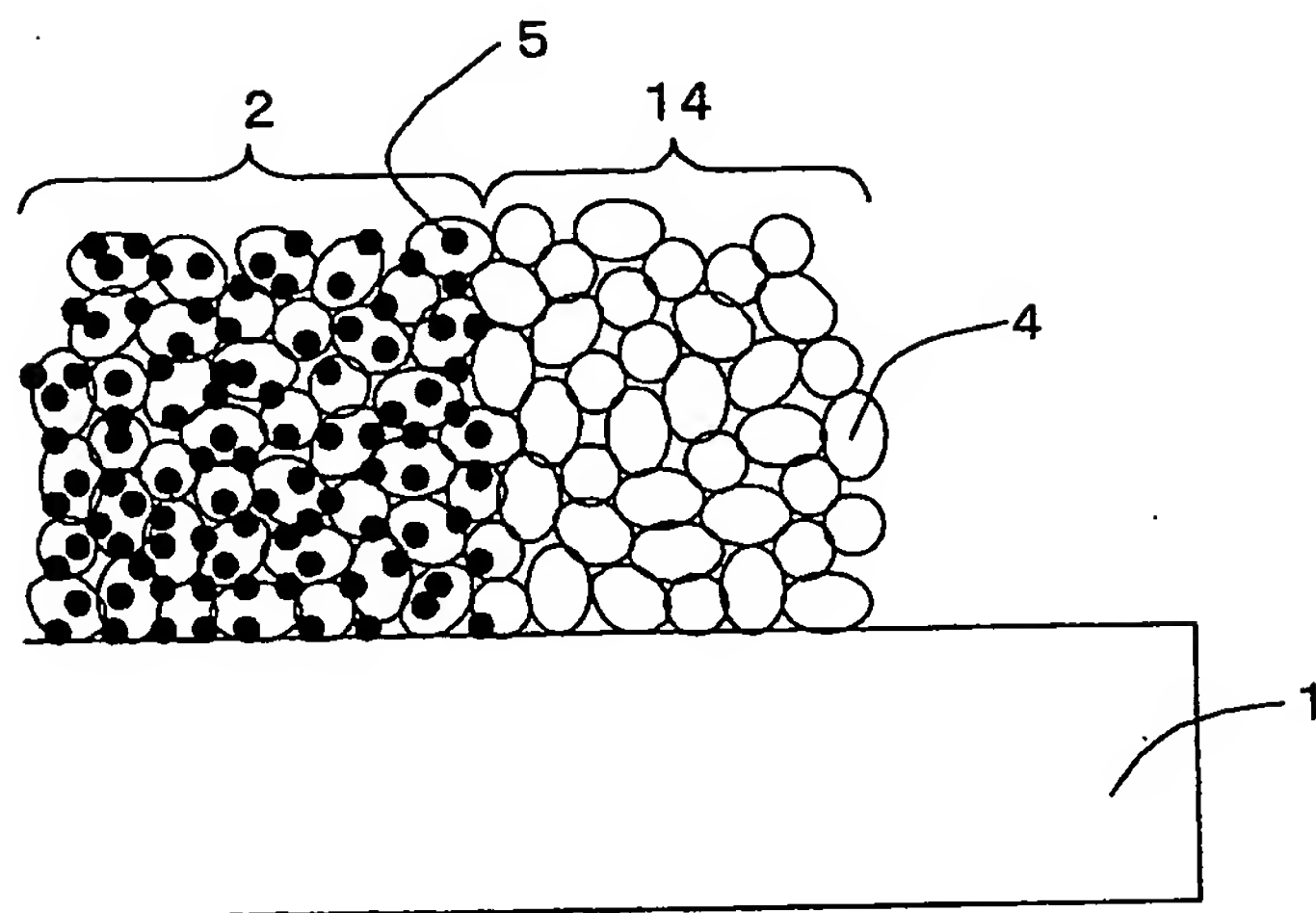
【図3】



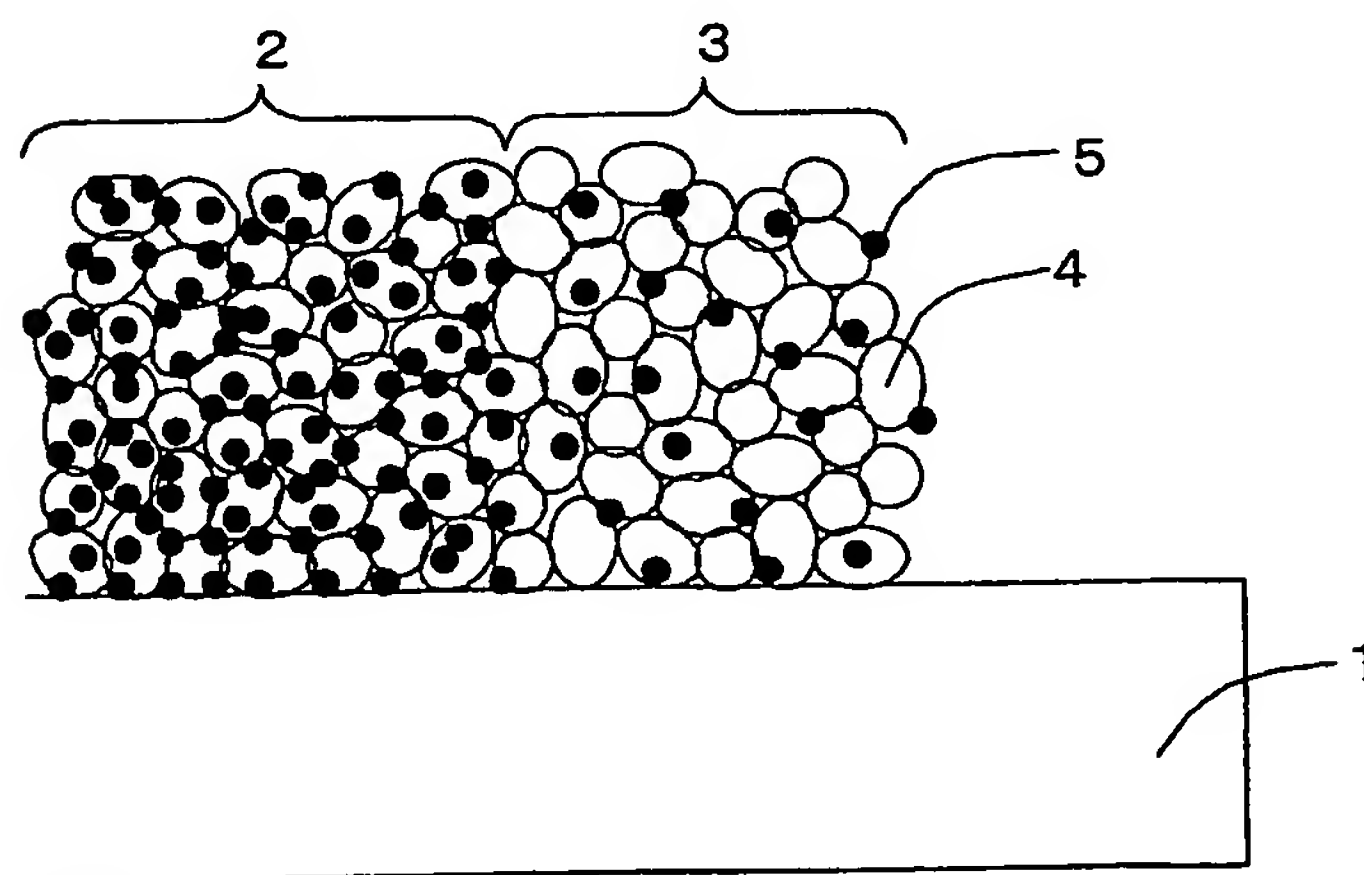
【図4】



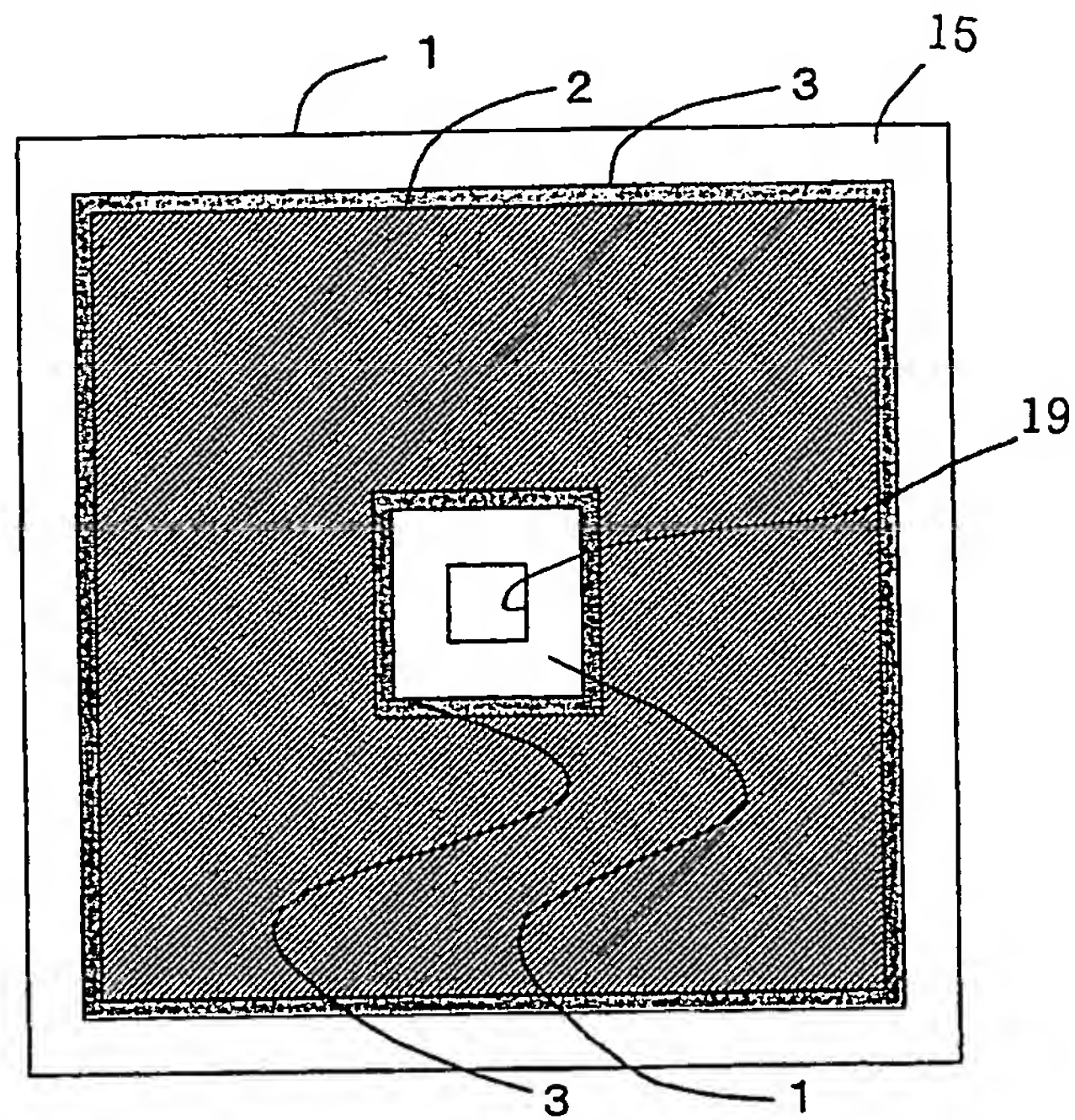
【図 5】



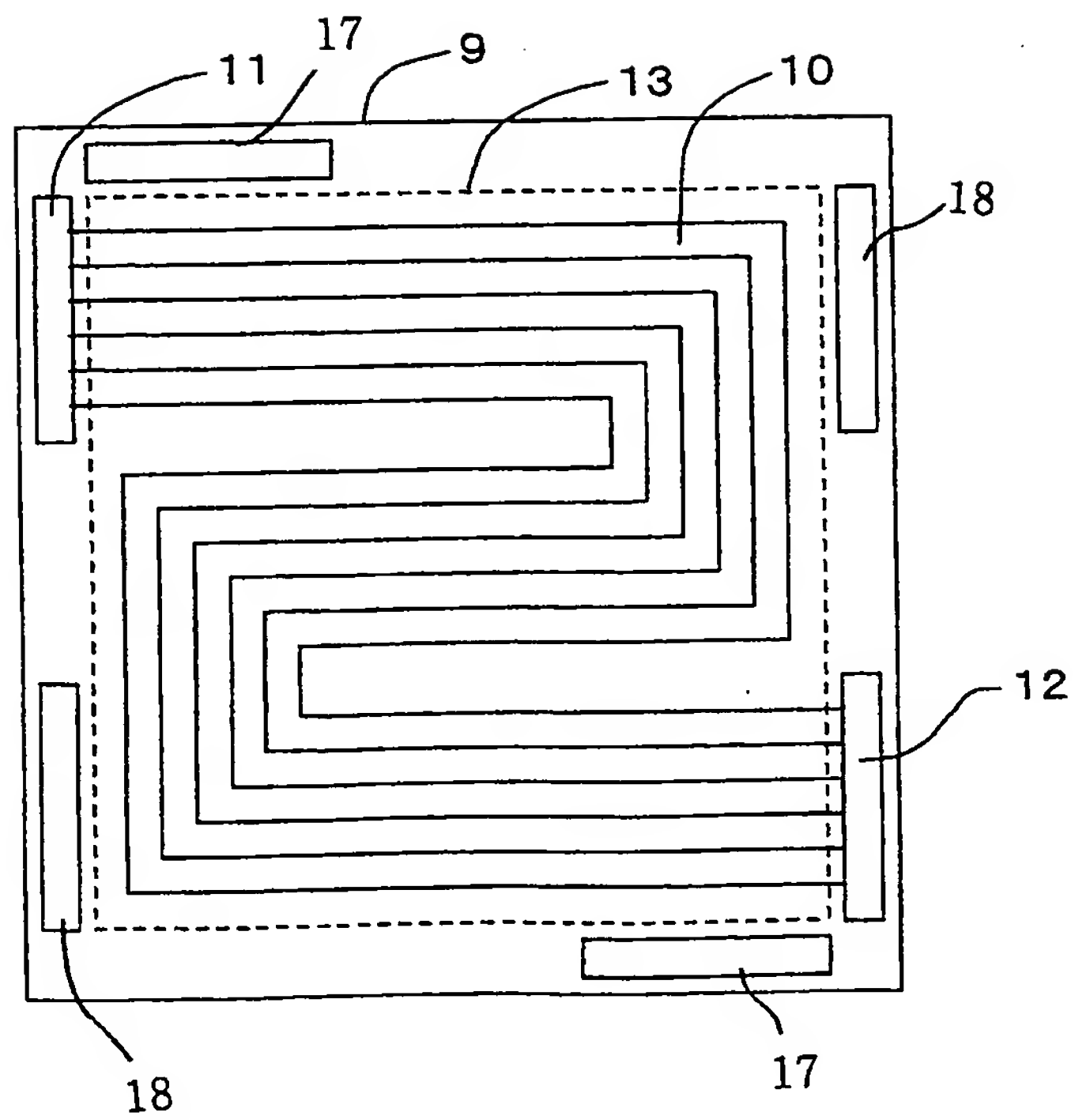
【図 6】



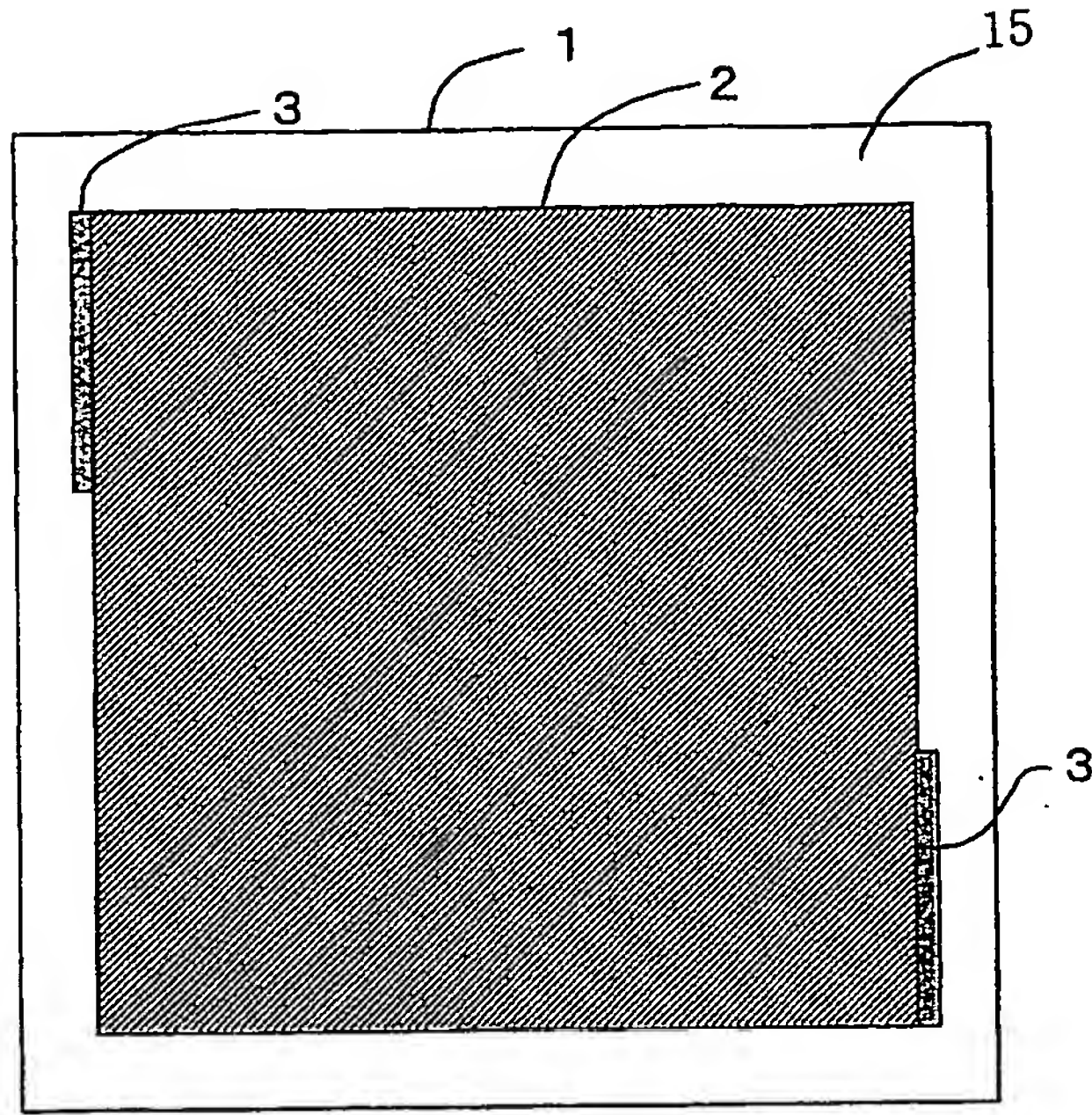
【図 7】



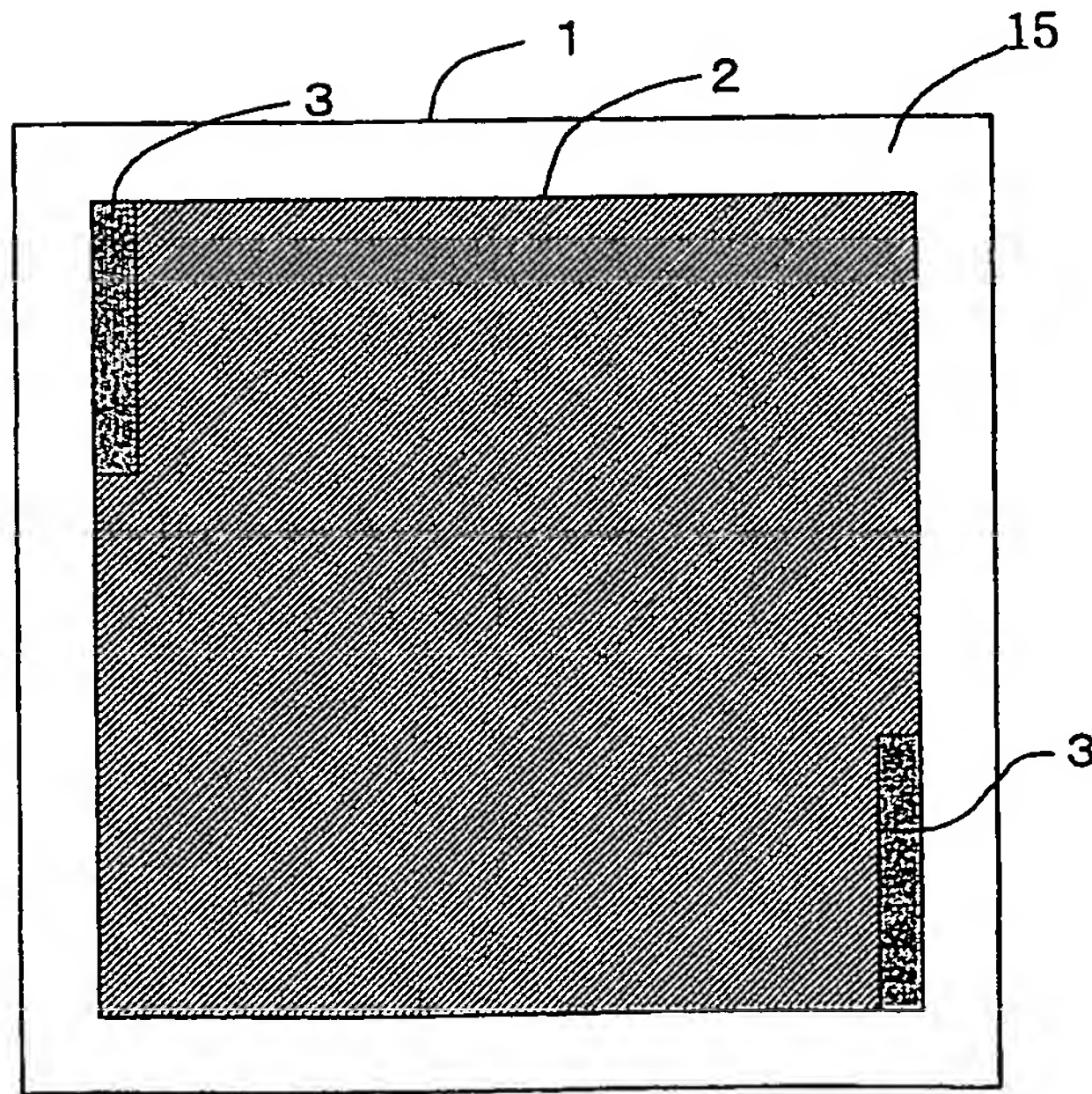
【図 8】



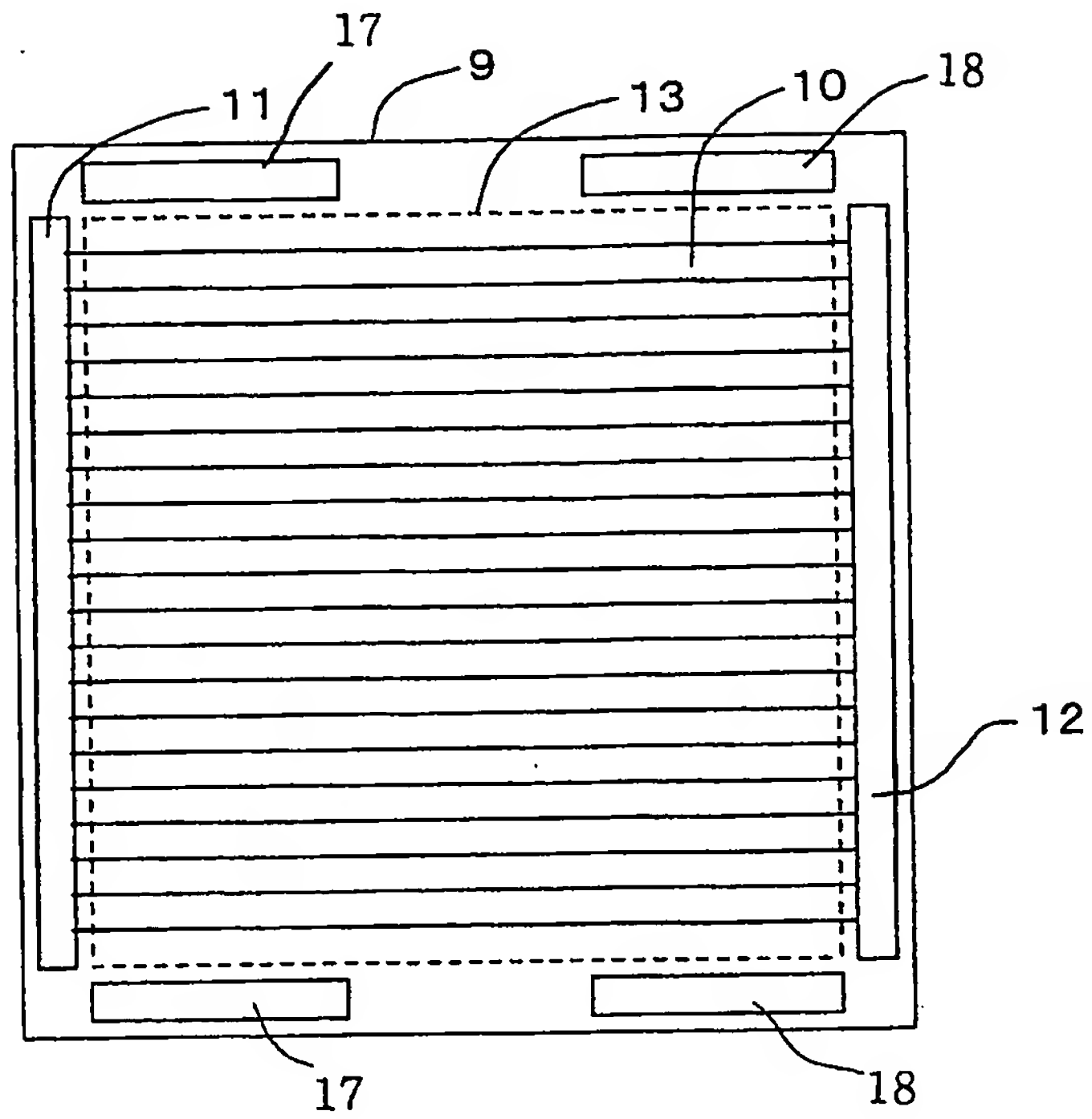
【図9】



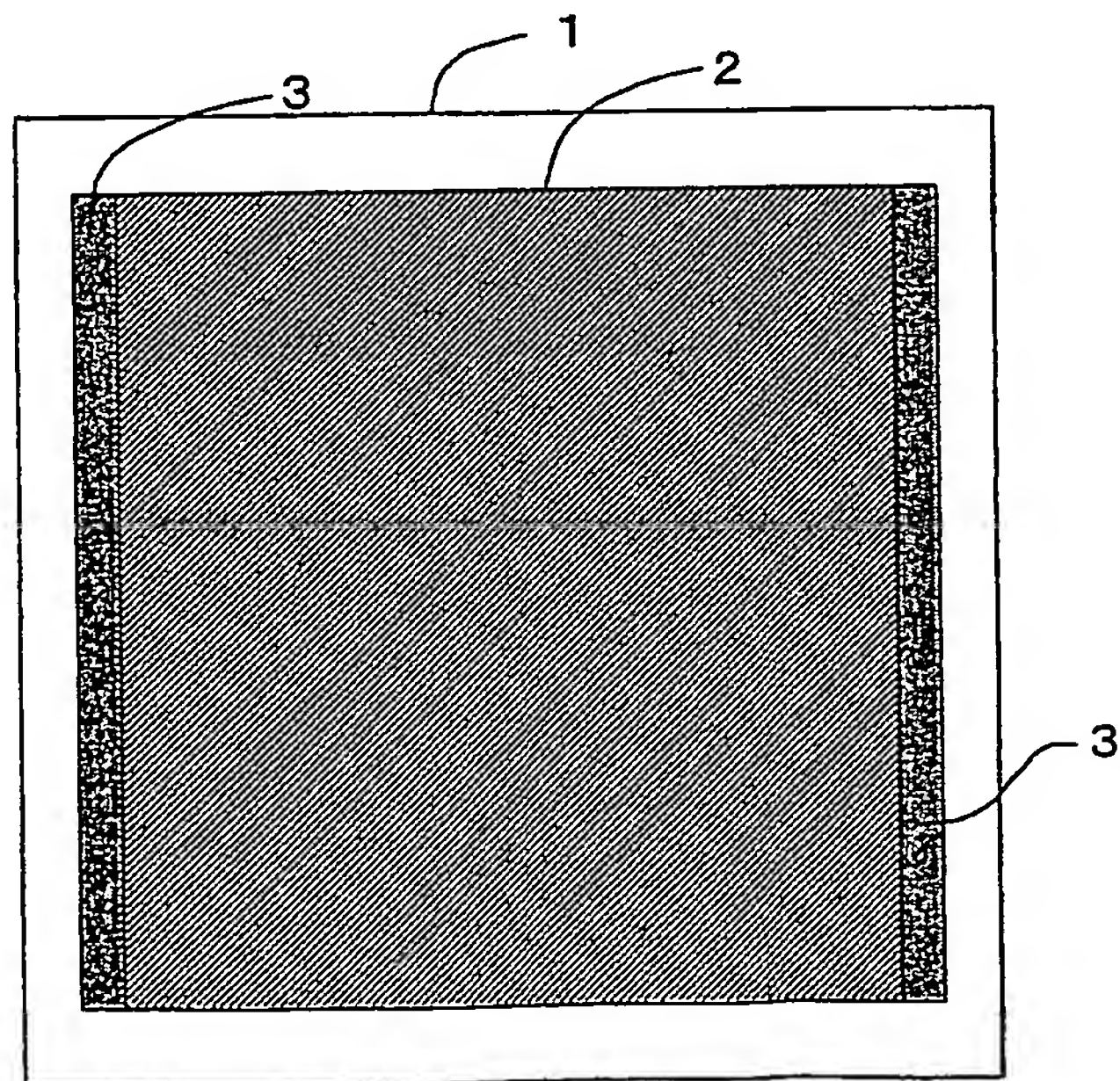
【図10】



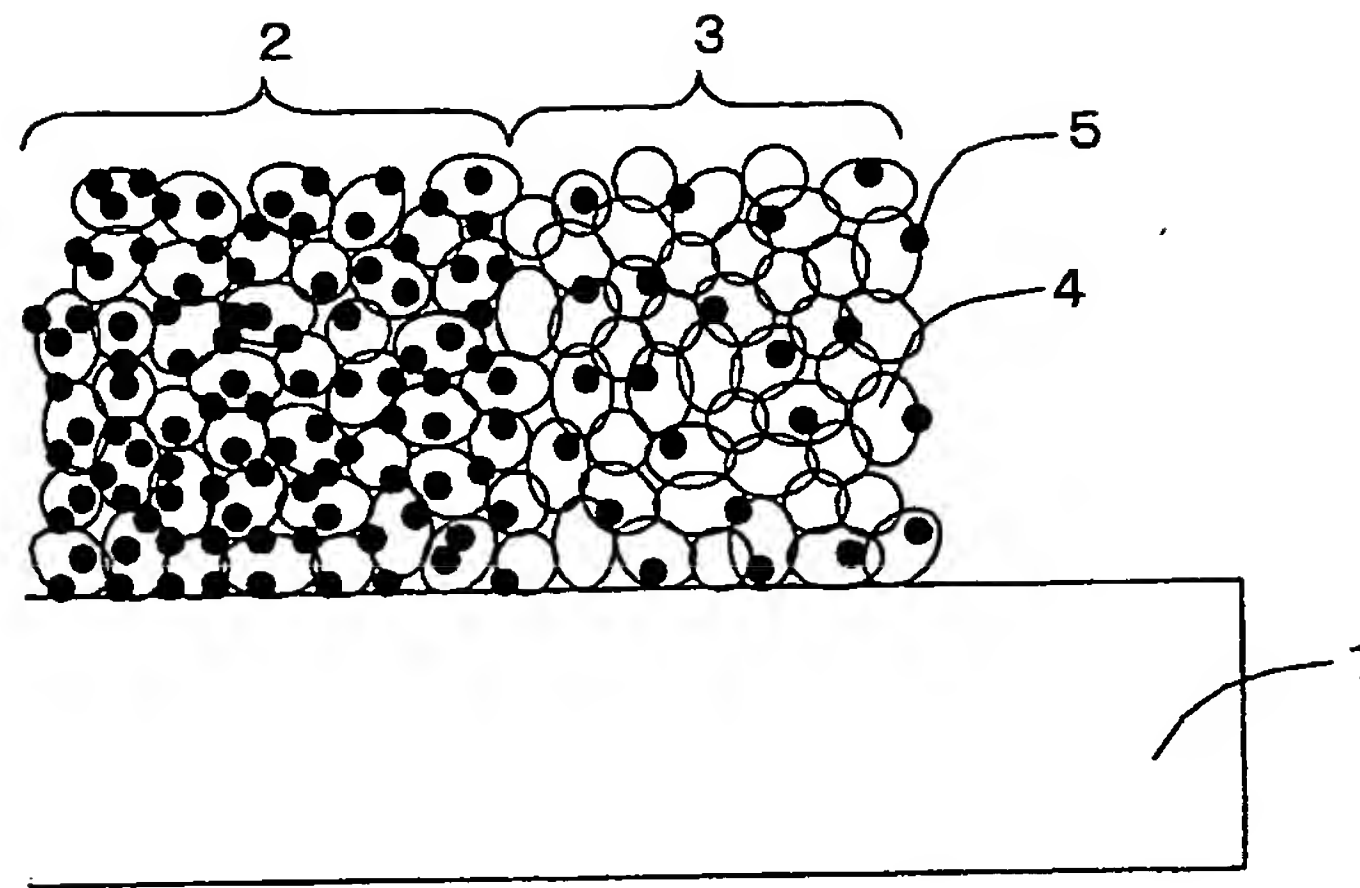
【図 11】



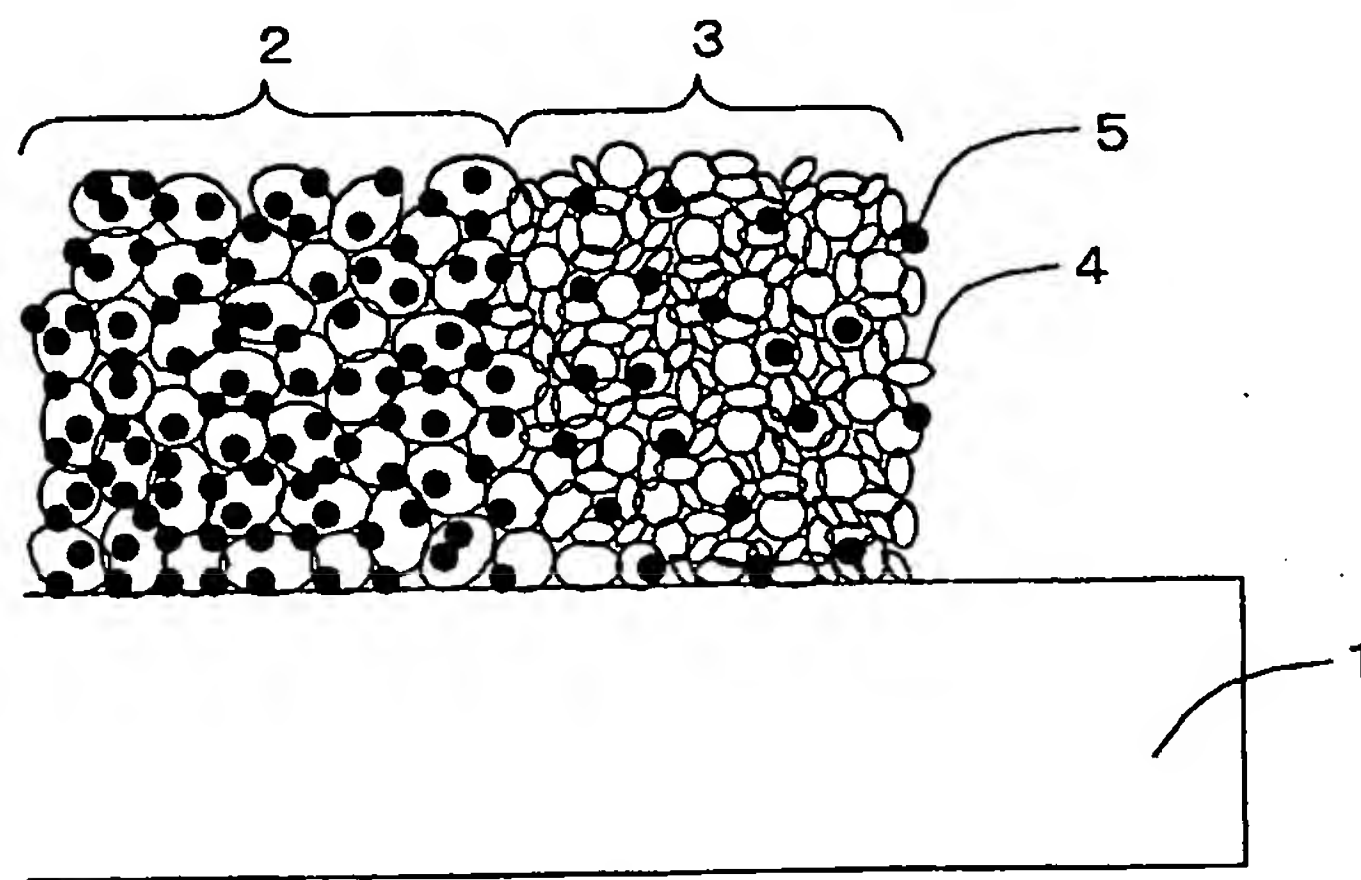
【図 12】



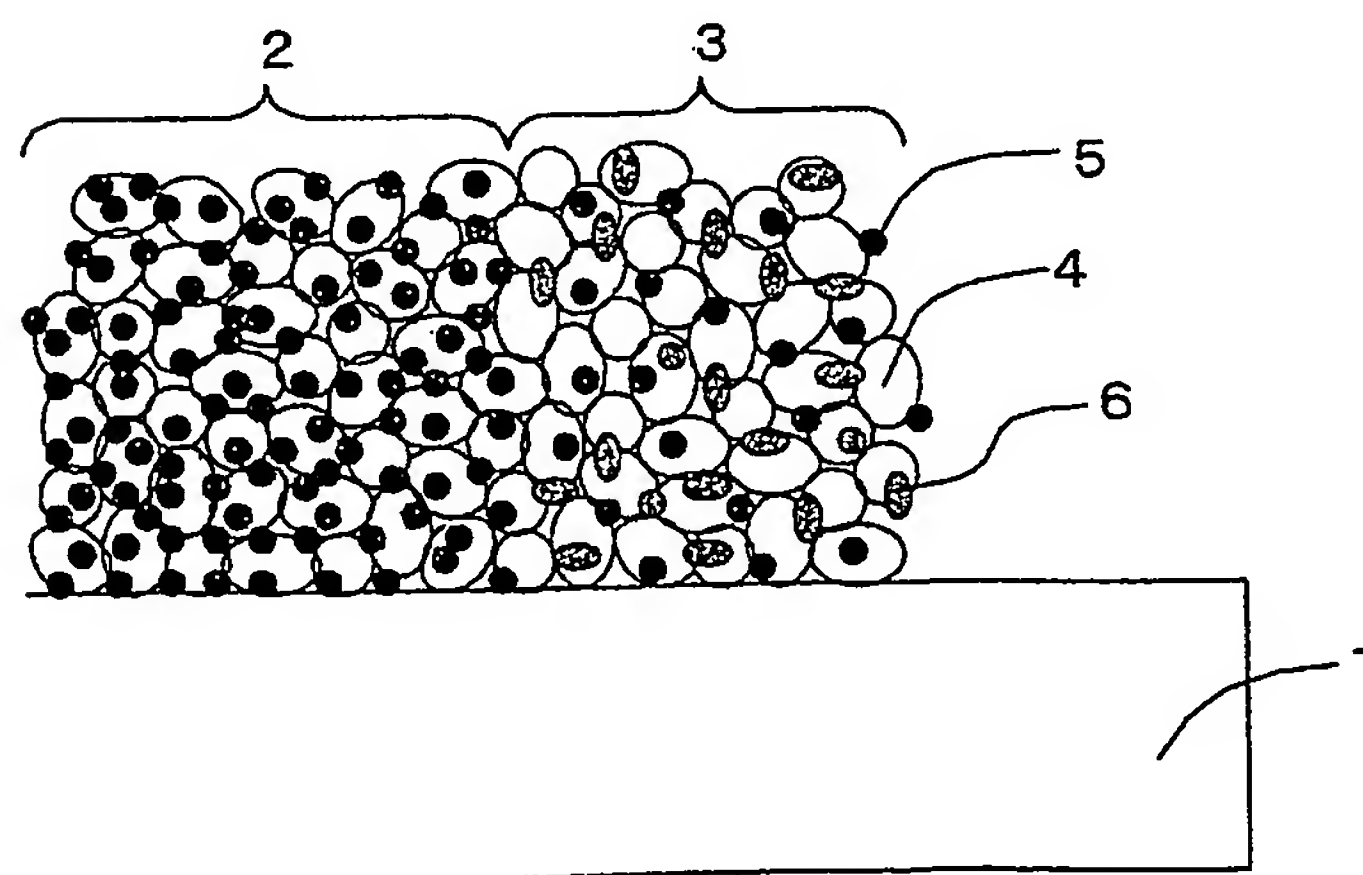
【図 13】



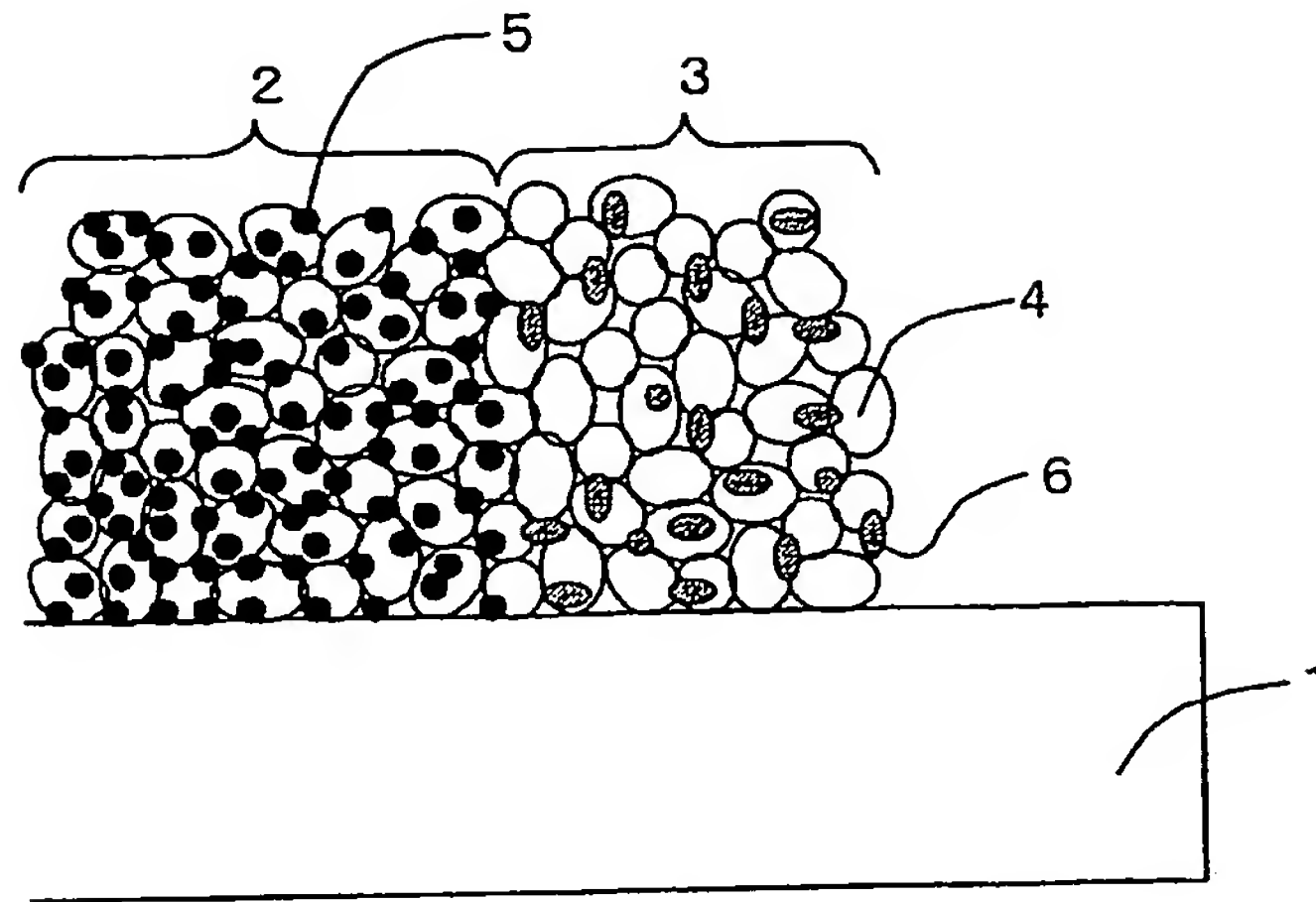
【図 14】



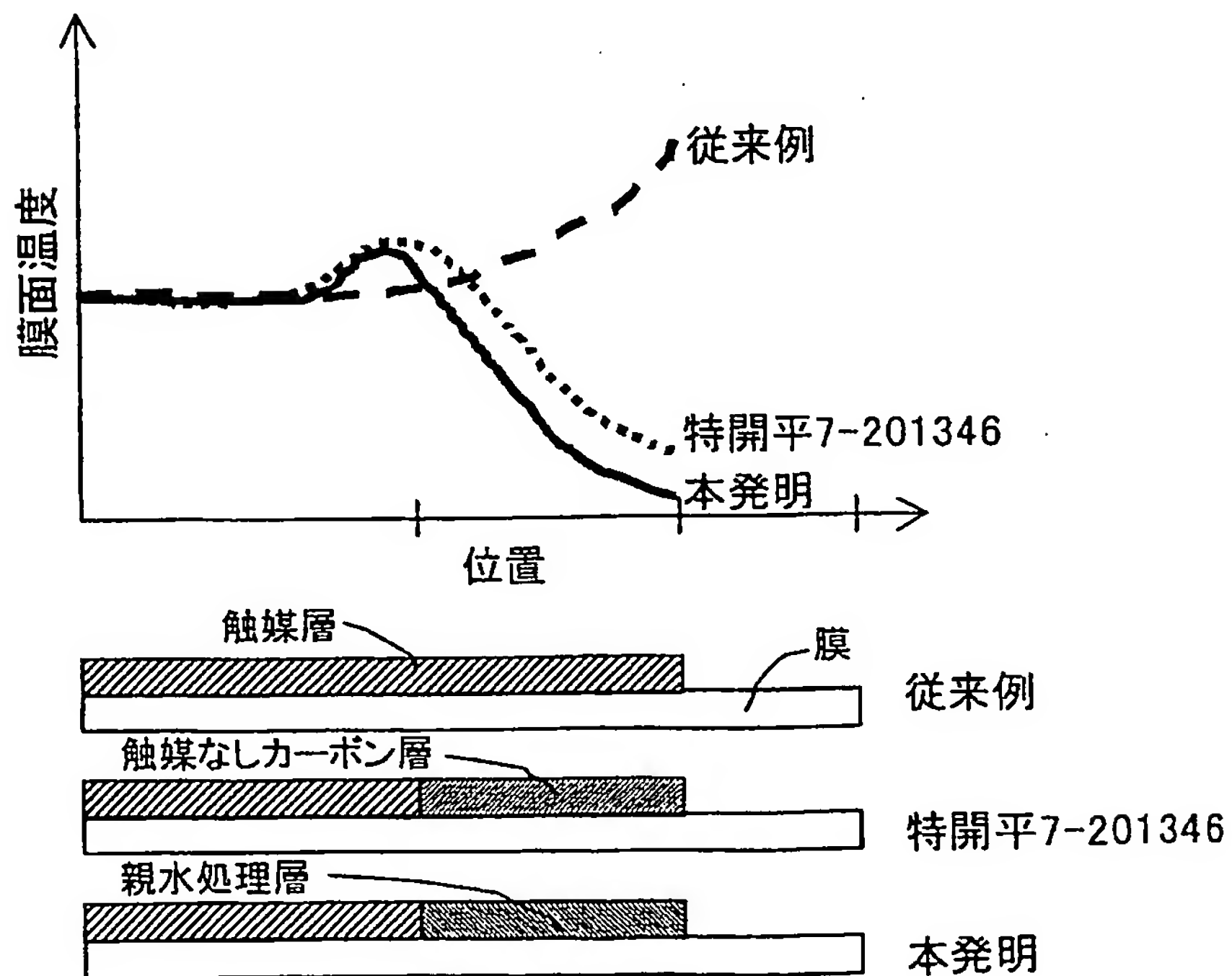
【図 15】



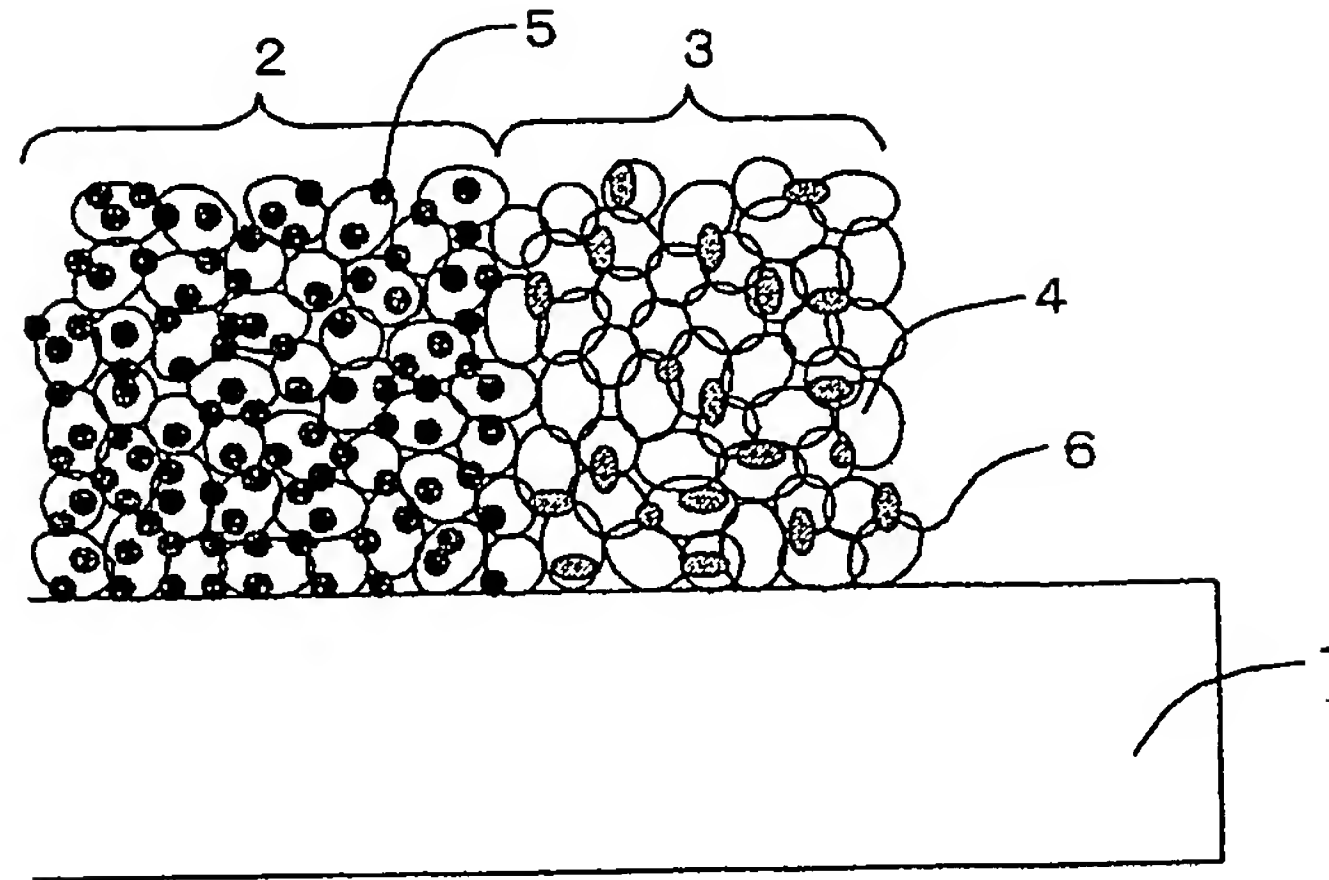
【図16】



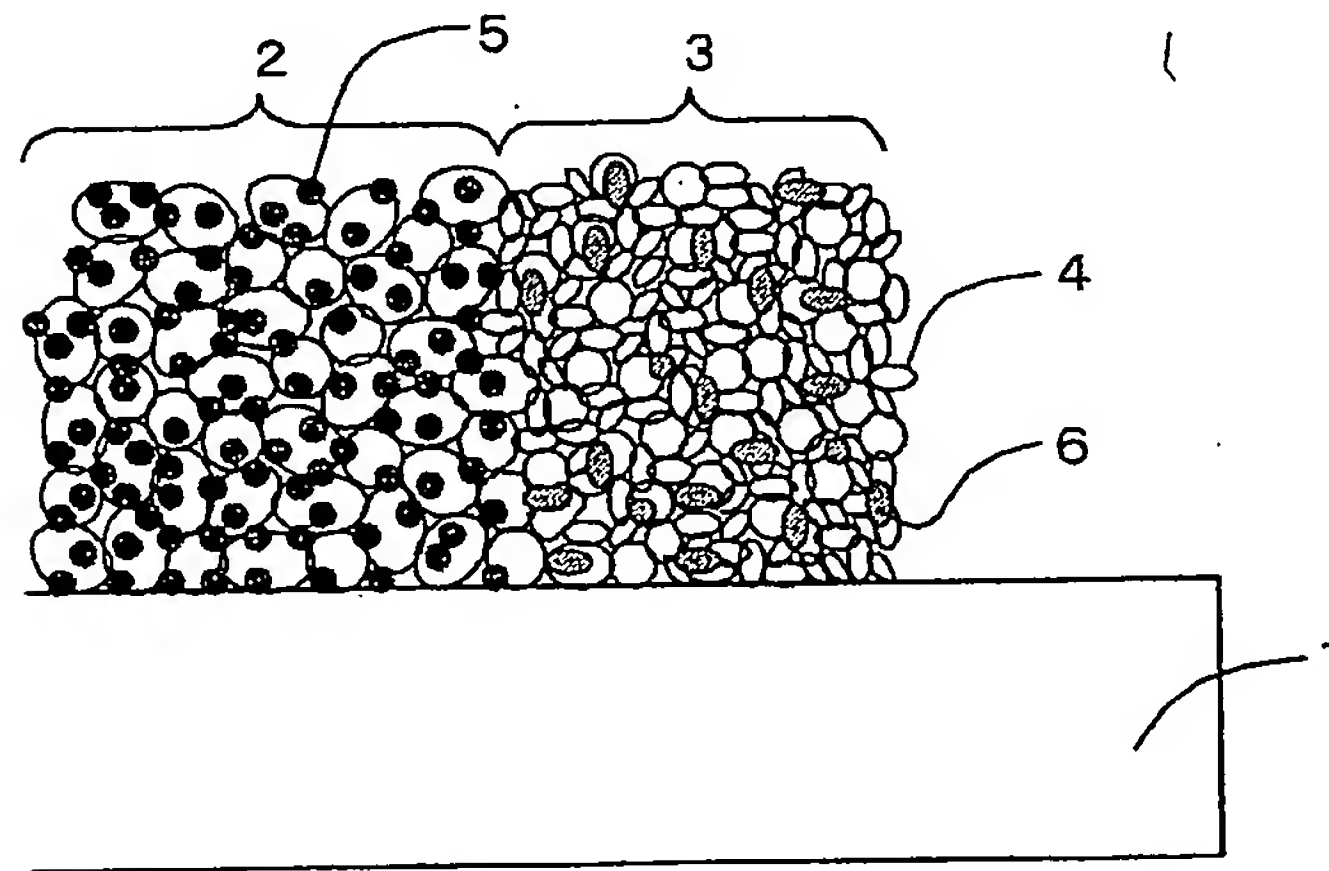
【図17】



【図 18】



【図 19】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池における電解質膜の耐久性を向上させる。

【解決手段】 互いに対向する各電極間に挟まれるアノード側とカソード側の両面に触媒層 2 を備え、イオン透過性を有する燃料電池用電解質膜 1 において、触媒層 2 を触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 によって形成し、触媒層 2 の周囲に境界層 3 を設け、この境界層 3 を触媒粒子 5 を担持した導電性粒子 4 によって形成し、この境界層 3 における触媒担持量を触媒層 2 における触媒担持量より小さくした。

【選択図】 図 6

特願 2003-382655

出願人履歴情報

識別番号

[000003997]

1. 変更年月日

1990年 8月31日

[変更理由]

新規登録

住所

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

氏名

日産自動車株式会社